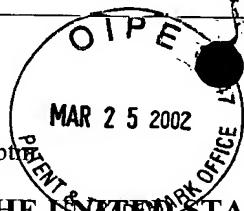


Docket No. 217349US3/btm



#4

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Toshihisa TERAZAWA, et al.

GAU: 1745

SERIAL NO: 10/025,480

EXAMINER:

FILED: December 26, 2001

FOR: SEPARATOR FOR FUEL CELL, METHOD FOR PRODUCING SEPARATOR AND FUEL CELL APPLIED WITH SEPARATOR

REQUEST FOR PRIORITY

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

- Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number [US App No], filed [US App Dt], is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
JAPAN	2000-396060	December 26, 2000

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- are submitted herewith
- will be submitted prior to payment of the Final Fee
- were filed in prior application Serial No. filed
- were submitted to the International Bureau in PCT Application Number .
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
- (B) Application Serial No.(s)
 - are submitted herewith
 - will be submitted prior to payment of the Final Fee

RECEIVED
MAR 26 2002
TC 1700

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

C. Irvin McClelland
Registration No. 21,124

Surinder Sachar
Registration No. 34,423



22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 10/98)



W7482(米)
10/025,480

217349 US-97-97-3

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年12月26日

出願番号

Application Number:

特願2000-396060

[ST.10/C]:

[JP2000-396060]

出願人

Applicant(s):

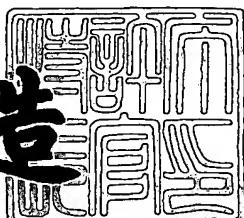
アイシン精機株式会社

RECEIVED
MAR 26 2002
TC 1700

2002年 1月 18日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3116303

【書類名】 特許願

【整理番号】 AK00-0642

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市八軒町5丁目50番地 株式会社イムラ材料開発研究所内

【氏名】 I 寺澤 俊久

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市八軒町5丁目50番地 株式会社イムラ材料開発研究所内

【氏名】 根津 伸治

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市八軒町5丁目50番地 株式会社イムラ材料開発研究所内

【氏名】 石井 正巳

【特許出願人】

【識別番号】 000000011

【氏名又は名称】 アイシン精機株式会社

【代表者】 豊田 幹司郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011176

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータ及びその製造方法並びに燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料電池用セパレータの製造方法において
カーボン粉末と熱可塑性樹脂とを配合し混合体を形成し、
該混合体を混練機によりペレット状とし、
該ペレット状混合体を押し出し成形により均一なシート状に成形し、
セパレータのパターンに対応した溝を有する圧延ローラーによりパターンをシ
ート状成形物に転写することにより
製造することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項2】 請求項1の製造方法において、前記混合体はカーボン粉末6
0～80重量%と熱可塑性樹脂粉末40～20重量%とからなることを特徴とする
燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項3】 請求項1若しくは2により製造された燃料電池用セパレータ

【請求項4】 請求項1若しくは2により製造された燃料電池用セパレータ
を有する燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は燃料電池用セパレータ及びその製造方法ならびに燃料電池に関するも
のであり、特に自動車等に用いられる固体高分子燃料電池及びそのセパレータ部
材、該セパレータ部材の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

固体高分子燃料電池は周知のように、イオン交換膜からなる電解質膜とその両
面に電極を設置し、それぞれの電極に燃料ガスあるいは酸化剤ガスを供給するた
めの溝（パターン）を設けたセパレータなどからなる単セルを積層したスタッ
クを形成している。

【0003】

その発電メカニズムはセルのアノード側電極に供給される燃料ガスとカソード側電極に供給される酸化剤ガスとを反応させて電気エネルギーを作製し、外部に取り出すものである。

【0004】

従って燃料ガスと酸化剤ガスとは完全に分離させるためセパレータ部材には高度なガス分離性と破損によるリークが発生しない強度とが要求されている。

【0005】

このためセパレータ部材の製造方法が燃料電池の開発においても従来より改善がすすめられ、金属板或いはカーボン板を機械加工などで製造する方法が採用されてきた。しかし、この方法では加工コストが高く、現在ではその成分としてカーボンと樹脂の組成物を圧縮或いは射出成形により製造することにより、低コスト化、高耐久性を上げる方法が採用されている。

【0006】

例えば特開2000-243409号公報においては圧縮成形（プレス成形）の方法が採用されている。この方法では機械加工に比べて製造コストは下がるが、金型の加熱、冷却に時間がかかり、また樹脂の硬化反応に時間がかかり（少なくとも5分以上の成形時間を要する）生産性は低い。

【0007】

さらにプレスによるバリの発生による板厚のばらつきや平面度にその精度をかくところがあった。

【0008】

別の従来技術として特開2000-332690号公報には射出成形による方法が開示されている。この射出成形では確かに生産性は高くなるが、射出成形では、成形原料に流動性を持たせる必要があり、バインダーとしての樹脂の量を多くしなければならない。しかし、セパレータとしての機能を發揮するためには樹脂量を増大すると、導電性が低下してしまう、という新たな課題が生じてしまう。

【0009】

更にセパレータの必要面積は規定の電流値により決まるが、自動車用燃料電池

として使用する場合スタックの小型化が必要であり、そのためセパレータの板厚を薄くしなければならない。しかし流動性という観点から、樹脂の配合割合などの制限から所定の厚さを得るのが困難である。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】

従って、本発明は、上記従来技術の問題点を解決することを課題とするもので、具体的には燃料電池のセパレータ部材の生産効率を高め、コスト低減したセパレータとその製造方法を提供することを課題とするものである。

【0011】

さらには高率のよいセパレータを用いた改良燃料電池の提供を技術的課題とするものである。

【0012】

【課題を解決する為の手段】

上記した技術的課題を解決する為に講じた技術手段は、請求項1にて示すように、燃料電池用セパレータの製造方法において

カーボン粉末と熱可塑性樹脂とを配合し混合体を形成し、
 該混合体を混練機によりペレット状とし、
 該ペレット状混合体を押出し成形により均一なシート状に成形し、
 セパレータのパターンに対応した溝を有する圧延ロールによりパターンをシート状成形物に転写することにより
 燃料電池用セパレータを製造すること、およびこの技術的解決手段により製造されるセパレータ、該セパレータを用いた燃料電池を構成したことである。

【0013】

こうして製造されたセパレータ及び燃料電池は現状の機能・性能を損ねること無く、生産性の高い、かつコスト低減を達成することができる。

【0014】

【発明の実施の形態】

本発明に係る燃料電池のセパレータ製造方法の概要を添付図面1に基き説明する。

【0015】

図1に示すように、本発明のセパレータはまずカーボン粉末と熱可塑性樹脂の粉末とをその割合をカーボン60～80重量%と熱可塑性樹脂40～20重量%を攪拌機の中に入れて混合する。この場合、熱可塑性樹脂としてはたとえばポリフェニレンスルフィド(PPS)、ポリフッ化ビニリデン(PVdF)、液晶ポリエステル(LCP)などが用いられる。これは固体高分子燃料電池の作動温度である、80℃から100℃でその強度が保証されるものが用いられる。更に、熱可塑性樹脂の配合量は20重量%より多く、かつ40重量%までが好ましい。これは、20%より少ないと次工程でのペレット作製時、或いはシート状への成形時に均一性が損われる恐れがあるからである。

【0016】

こうして攪拌された混合体は二軸混練機（本事例では二軸スクリュー式ニーダーを使用）に供給し、この中で混練を行なう。ここで均一なペレット状或いは造粒粉末状とされた混合体はさらに押出し成形機に供給され、押出しによりシート状に成形される。

【0017】

更にこの押し出し成形されたシート状のセパレータ部材に、あらかじめ設計されたパターンに対応する凹凸あるいは溝を形成した圧延ローラーで圧延をするとともに、パターンを形成する。このパターンはそれぞれの電極に燃料ガス、酸化剤ガスあるいは冷却水を供給するためのガスあるいは水供給溝（パターン）に対応する。

【0018】

圧延され溝を形成されたシート状セパレータはその後ヒーターで加熱し、所望の形状に打ち抜き成形し、セパレータが完成する。

【0019】

本発明の押出し圧延成形による方法と従来成形方法との比較表を以下に示す。

【0020】

【表1】

表1 セパレータ製造方法の比較表

成形方法	樹脂の種類	成形時間	コスト	成形精度	樹脂量(重量%)	特性	
						固定抵抗	強度
圧縮成形	熱硬化性	5分以上	△	×	10重量%以上	○	○
	熱可塑性	20分以上	×	×	10重量%以上	○	○
射出成形	熱硬化性	30~60秒	○	×	40重量%以上	×	○
	熱可塑性	30~60秒	○	×	30重量%以上	△	○
押出し圧延成形	熱可塑性	30~60秒	○	○	20重量%以上	○	○

この表からわかるように、従来の圧縮成形による場合には成形時間が5分以上かかり生産効率は低い。又、プレス加工のバリの発生などの影響から、平面度を考慮すると成形精度はよくない。射出成形方法の場合は特に熱可塑性樹脂を用いれば成形時間の短縮は図れるが、成形原料の流動性が必要であり、少なくとも30重量%以上の樹脂を配合する必要性がある。このため、固有抵抗が十分取れないとため導電性が悪い。

【0021】

これに対して本発明の押出し圧延方法では成形時間は非常に短時間で、かつ樹脂の重量%も射出成形の場合のような流動性の問題はなく、20%あればよい。このため、コスト、成形精度とも良好で、本来の性能を損ねること無く生産効率を高めることができる。尚、強度の比較は従来のカーボン板の機械加工との比較であり、全て必要強度を満足している。

【0022】

なお、表1に記載の内容を、以下に図1に基き具体的な実施例として説明する。

【0023】

実施例1

(1) カーボン粉末として、鱗片状黒鉛粉末400gを使用し、樹脂材としてポリフエニレンスルフィド（以下PPSと記す）粉末100gを使用し、両者を攪拌機に入れ、攪拌混合をおこない、この作業を繰り返し2kgの混合粉末を作製した。

【0024】

(2) 得られた混合粉末を二軸スクリュウ式ニーダをもちいて温度300℃、回転数200rpmで混練、ブレンダーにより粉碎、筛い分けをおこない0.1～5mmペレットを作製した。

【0025】

(3) 得られたペッレットを射出成形機にTダイを付けた押出装置で押し出し成形し、230℃に加熱した平圧延ロールと、さらに180℃に加熱した平圧延ロールを配置した圧延装置により圧延して、幅約100mm厚さ約3mmの外観良好なシート成形体を得た。尚、Tダイの開口部寸法は幅100mm、高さ4mm、第一圧延ロール間距離は3.8mm、第二圧延ロール間距離は3.0mmにセットした。

【0026】

実施例2

鱗片状黒鉛粉末300gにPPS粉末200gを攪拌混合をおこなった以外は実施例1(1)～(3)と同様の工程で外観良好なシート成形体を得た。

【0027】

実施例3

(1) 鱗片状黒鉛粉末350gにポリフッ化ビニリデン（以下PVdFと記す。）粉末150gを攪拌機に入れ、攪拌混合をおこない、この作業を繰り返し2kgの混合粉末を作製した。

【0028】

(2) 得られた混合粉末を二軸スクリュウ式ニーダをもちいて温度230℃、回転数200rpmで混練、ブレンダーにより粉碎、筛い分けをおこない0.1～5mmペレットを作製した。

【0029】

(3) 得られた造粒粉末を前述の射出成形機にTダイを付けた押出装置で180℃に

加した平圧延ロールと、さらに80°Cに加熱した平圧延ロールを配置した圧延装置により幅約100mm厚さ約3mmの外観良好なシート成形体を得た。Tダイの開口部寸法は幅100mm、高さ4mm、第一圧延ロール間距離は3.8mm、第二圧延ロール間距離は3.0mmにセットした。

【0030】

比較例1

鱗片状黒鉛粉末425gにPPS粉末75gを攪拌混合をおこなった以外は実施例1(1)～(3)と同様の工程でシート成形体の作製を試みたがTダイよりシート状に押出しえなかつた。

【0031】

比較例2

鱗片状黒鉛粉末250gにPPS粉末250gを攪拌混合をおこなった以外は実施例1(1)～(3)と同様の工程で外観良好なシート成形体を得た。しかし、固有抵抗が大きすぎる($343\text{m}\Omega \cdot \text{cm}$)ため燃料電池のセパレータとしては使用できない。

【0032】

比較例3

鱗片状黒鉛粉末250gにPVdF粉末250gを攪拌混合をおこなった以外は実施例3(1)～(3)と同様の工程で外観良好なシート成形体を得た。しかし比較例2同様、固有抵抗が高く実用的とはいえない。

【0033】

評価 上記実施例1～3および比較例1～3で得られたシート成形体から試験片を機械加工により切り出して密度、ガス透過、固有抵抗および曲げ強さを測定した。比較例1は加工不可であった。比較例2及び3は固有抵抗値で不可であった。

【0034】

密度：□100mm厚さ約3mmの試験片での重量、寸法（縦、横、厚さ）を測定、重量/体積により算出。

【0035】

ガス透過：試験片（外径 $\phi 13\text{mm}$ 、板厚8mm）を両側よりホルダーで挟み固定片面より $0.1\sim 1\text{kg/cm}^2$ で H_2 ガスを充填、反対面に一定流量の N_2 キャリアーガスを流し

、N₂ガス中のH₂ガス濃度をガスクロマトグラフィにより測定。

【0036】

固有抵抗：水銀電極法（電極サイズφ30mm）による電圧降下により厚さ方向の固有抵抗を測定。

【0037】

曲げ強さ：試験片サイズ（幅10mm、長さ80mm）JIS K-7203に準拠して三点曲げ法（支点間距離60mm）により測定。

【0038】

結果を表2に示す。

【0039】

【表2】

表2 実施例と比較例の結果

	樹脂	配合比 (重量%)	密度 (g/cm ³)	ガス透過 (cc·cm/cm ² · sec·atm)	固有抵抗 (Ω·cm)	曲げ強さ (kgf/cm ²)
実施例 1	PPS	20	1.92	10 ⁻⁴ 以下	15	4.9
実施例 2	PPS	40	1.75	10 ⁻⁴ 以下	45	6.2
実施例 3	PVdF	30	1.95	10 ⁻⁴ 以下	19	5.2
比較例 1	PTS	15	***	-	-	-
比較例 2	PPS	50	1.64	10 ⁻⁴ 以下	343	6.4
比較例 3	PVdF	50	1.98	10 ⁻⁴ 以下	162	5.8

*** : 良好な成形体が得られなかった。

- : 計定不能

実施例4

実施例1(1)～(2)と同様の工程により得られたペッレットを図1に示すような射出成形機にTダイを付けた押出装置で、180℃に加熱した平圧延ロールで圧延し、更に、図2 (a) に示すような230℃に加熱した溝を付けた上圧延ロール1と下圧延ロール2とを配置した圧延装置により幅約100mm厚さ約1.5mmの外観良好な溝を有するセパレータ（図3）を得た。図3 (b) は図3 (a) のA-A断面を表す。

【0040】

尚、図2 (b) 及び (c) は夫々図2 (a) の上圧延ロール1のX-X断面、下圧延ロール2のY-Y断面を表す。

【0041】

実施例5

実施例4により作製したセパレータ二枚のフラット面を超音波接合により張り合わせ両面に溝のあるセパレータを作製した。

【0042】

実施例6

実施例1(1)～(2)と同様の工程により得られたペッレットを図1に示すような射出成形機にTダイを付けた押出装置に230℃に加熱できる平圧延ロールにて圧延し、さらに180℃に加熱した図4に示すようなパターンを有する上圧延ロール10、下圧延ロール20を配置した装置により幅約100mm厚さ約3mmの外観良好なパターン転写されたセパレータ(図7、8)を得た。尚、図5(a)は上圧延ロール10のパターンをわかりやすくするために展開したもので、図5(b)は図5(a)のB-B断面を表す。同様に図6(a)は下圧延ロール20のパターンを展開したもので、図6(b)は図6(a)のC-C断面を表す。

【0043】

図7は上記実施例6の上圧延ロールのパターンにより転写されたセパレータ30に設けられたガス供給用溝(パターン)を示している。

【0044】

図7(b)は図7(a)のD-D断面を表している。

【0045】

同様に、図8は下圧延ロールのパターンが転写されたセパレータ30の裏面を示している。同様に、図8(b)は図8(a)のE-E断面を表す。

【0046】

【発明の効果】

このようにして製造されたセパレータはその生産効率は高く、かつ、密度、ガス透過性、固有抵抗、曲げ強さなどの性能も十分高いものである。このセパレータを用いて作成される燃料電池はそのコスト面からも性能面からも従来技術により作成されたものと比較し、実施性の高いものとなっている。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明のセパレータの製造工程の概念図を示す。

【図2】 実施例4で用いられた圧延ロール装置の概略図を示す。

【図3】 図2の圧延ロール装置により作成したセパレータの概略図を示す

【図4】 実施例6で用いられた、凹凸を付けた圧延ロール装置の概略図を示す。

【図5】 図4の上圧延ロールのパターンを展開した図を示す。

【図6】 図4の下圧延ロールのパターンを展開した図を示す。

【図7】 図4の圧延ロールで作成されたセパレータのパターンを示す。

【図8】 図7と同様に図4の圧延ロールで作成されたセパレータのパターンを示すが、特に下圧延ロールによる、裏面側のパターンを示す。

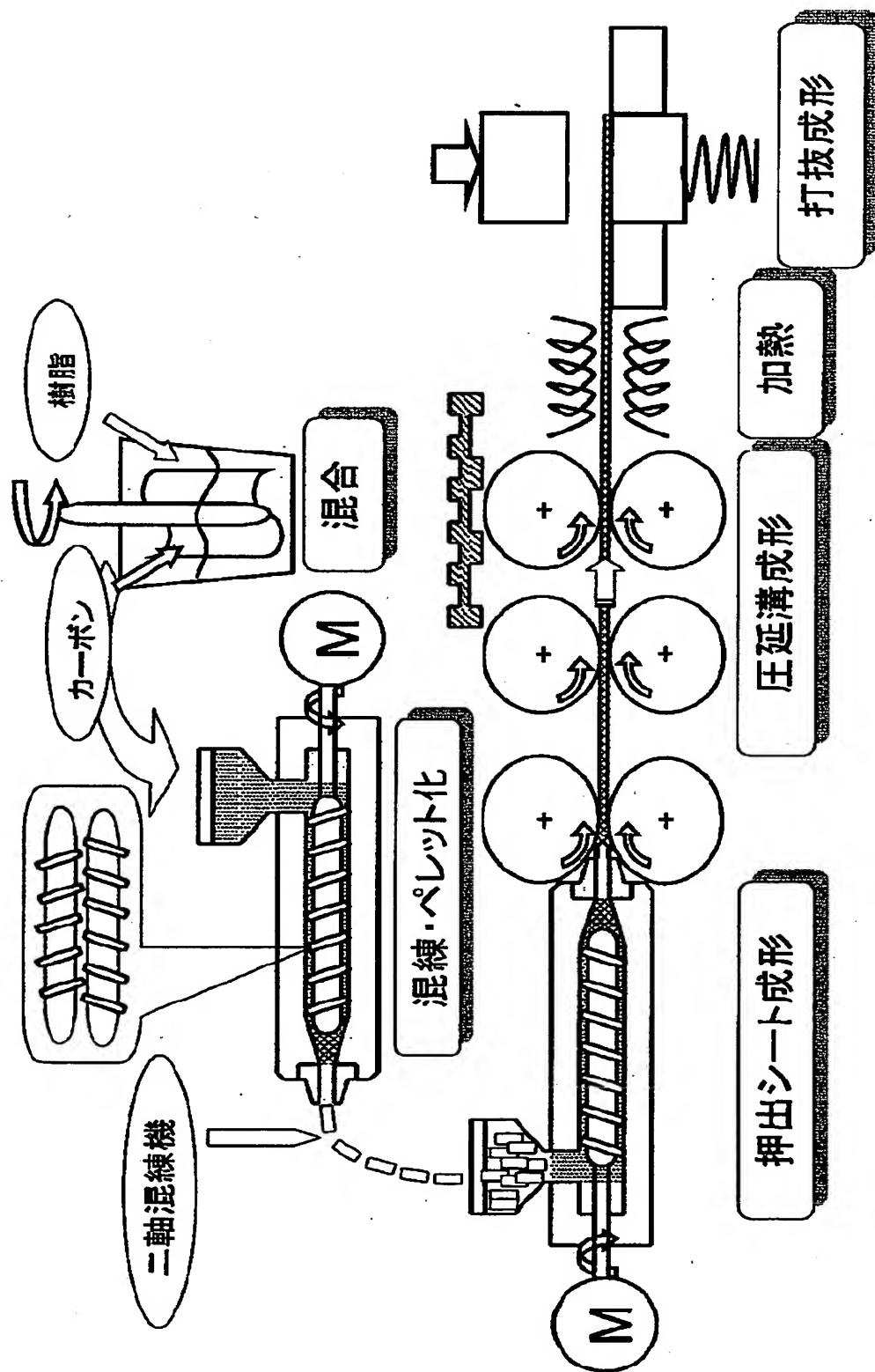
【符号の説明】

2、10、20…圧延ロール

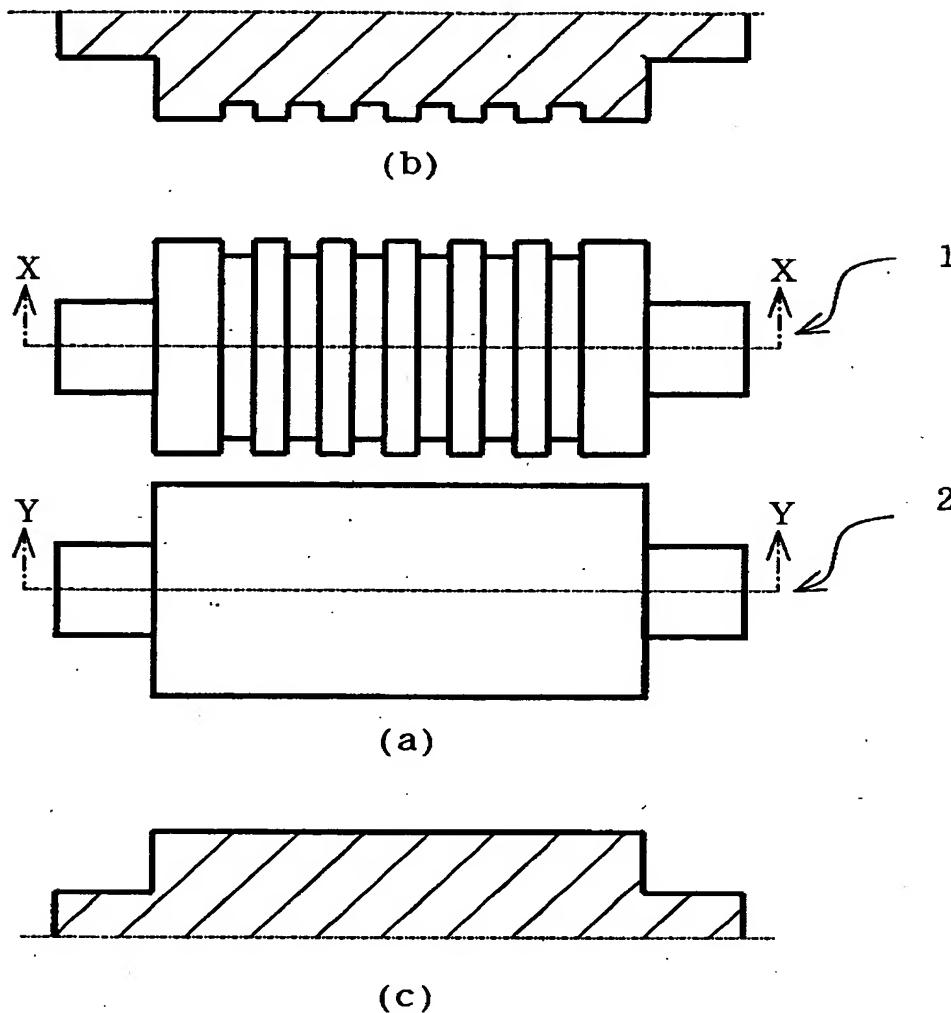
30…セパレータ

【書類名】 図面

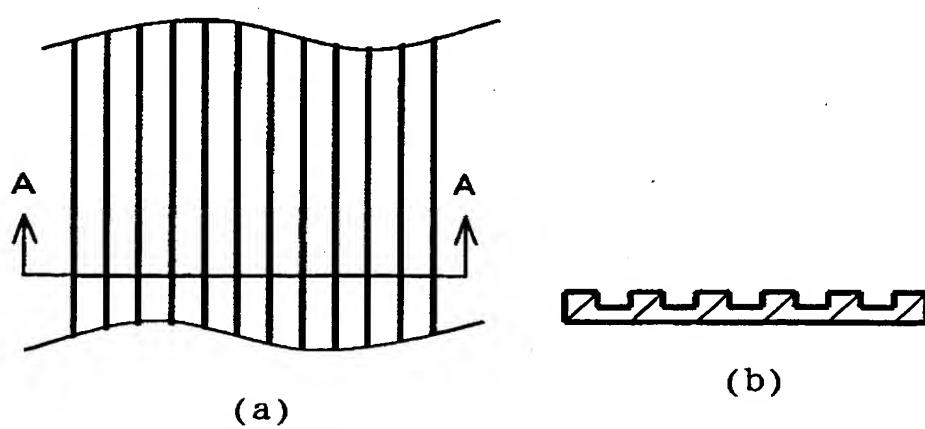
【図1】



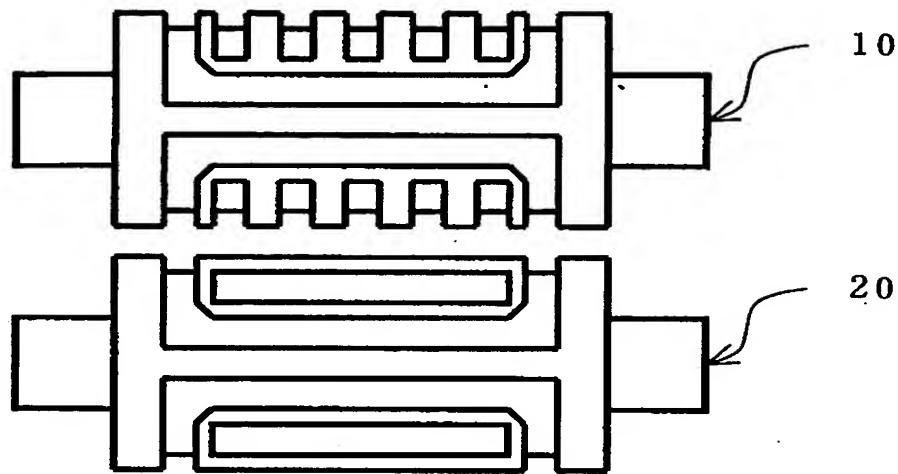
【図2】



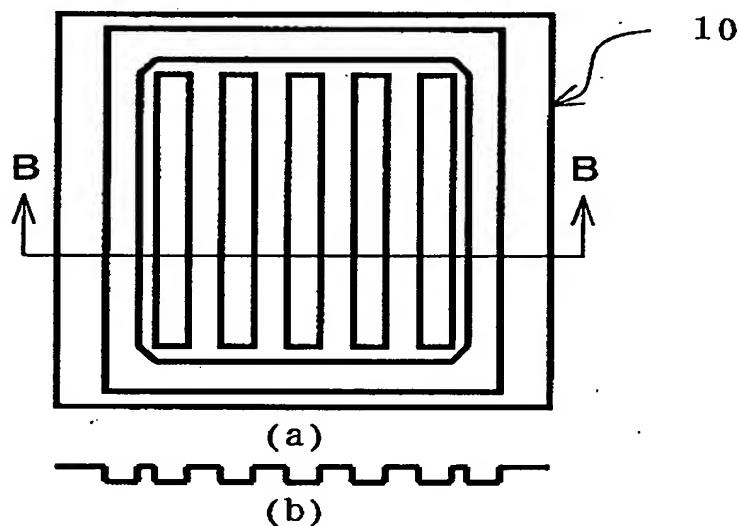
【図3】



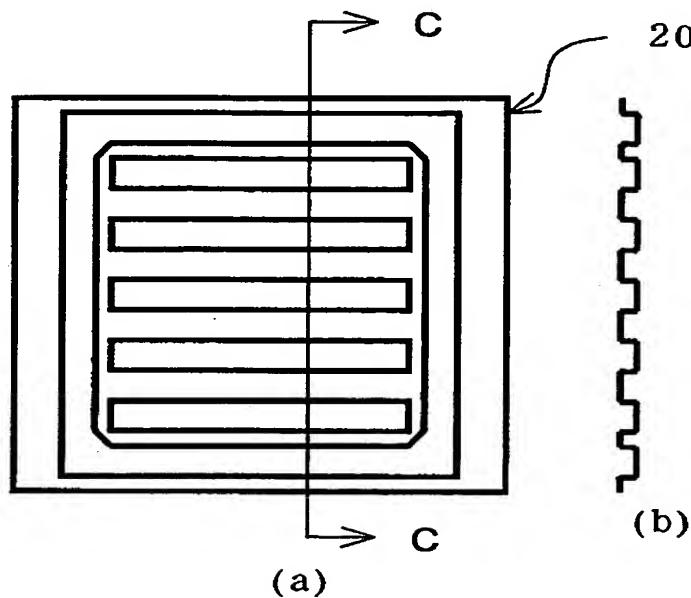
【図4】



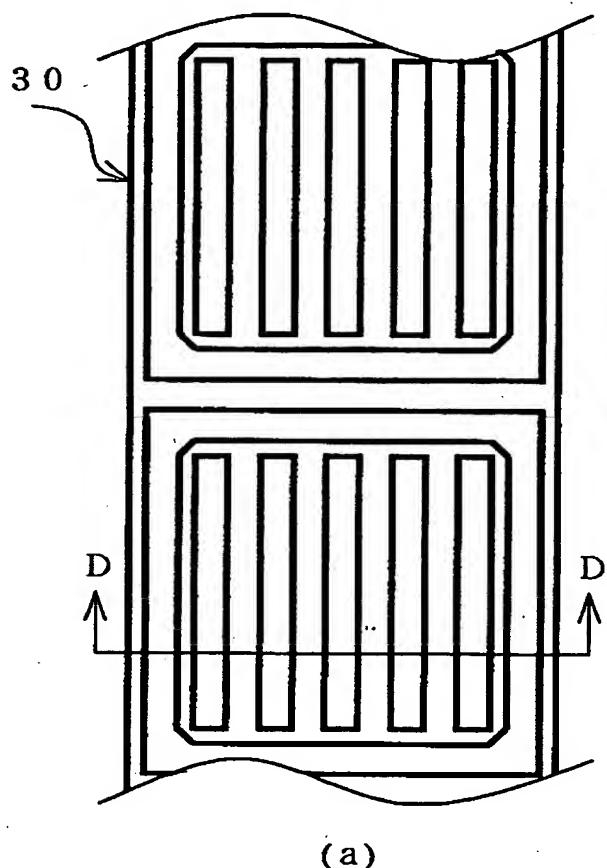
【図5】



【図6】



【図7】

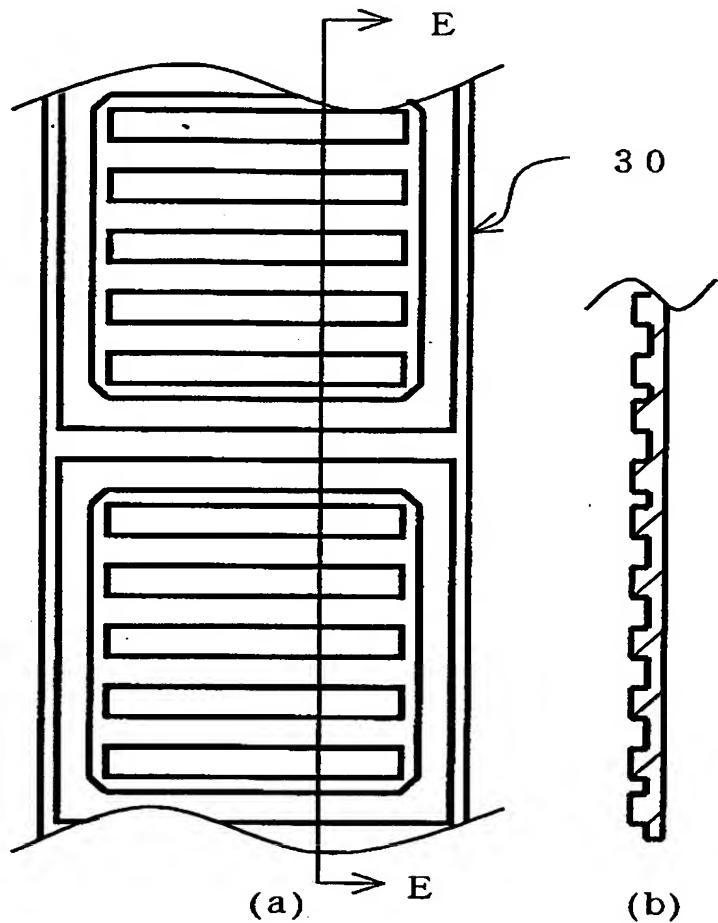


(a)



(b)

【図8】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】 燃料電池のセパレータの生産効率をあげること。

【解決手段】 燃料電池用セパレータの製造方法において、カーボン粉末と熱可塑性樹脂とを配合し混合体を形成し、該混合体を混練機によりペレット状とし、

該ペレット状混合体を押し出し成形により均一なシート状に成形し、
セパレータのパターンに対応した溝を有する圧延ロールによりパターンをシート
状成形物に転写することにより
燃料電池用セパレータを製造すること。

【選択図面】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-396060
受付番号	50001684277
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成12年12月27日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成12年12月26日

次頁無

出願人履歴情報

識別番号 [000000011]

1. 変更年月日 1990年 8月 8日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県刈谷市朝日町2丁目1番地

氏 名 アイシン精機株式会社